PCT/JP99/05627

15.11.99

EJU

日 本 国 特 許 庁
PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: １９９８年１０月１２日

REC'D 06 JAN 2000
WIPO

出 願 番 号
Application Number: 平成１０年特許願第２８９０１６号

出 願 人
Applicant (s): 鐘淵化学工業株式会社

PRIORITY
DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

１９９９年１２月１７日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office 近藤隆彦

出証番号 出証特平１１－３０８７５８９

【書類名】　特許願

【整理番号】　OSK3887

【提出日】　平成10年10月12日

【あて先】　特許庁長官殿

【国際特許分類】　C08L 69/00

C08K 3/00

C08K 9/02

【発明の名称】　ポリカーボネート樹脂組成物および製造方法

【請求項の数】　7

【発明者】

【住所又は居所】　大阪府摂津市鳥飼西５－５－３２－Ｂ５０４

【氏名】　鈴木　紀之

【特許出願人】

【識別番号】　000000941

【氏名又は名称】　鐘淵化学工業株式会社

【代表者】　古田　武

【手数料の表示】

【予納台帳番号】　005027

【納付金額】　21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】　明細書　1

【物件名】　要約書　1

【プルーフの要否】　要

出証特平１１－３０８７５８９

【書類名】　明細書

【発明の名称】　ポリカーボネート樹脂組成物および製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項１】　ポリカーボネート樹脂およびシラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物であって、シラン粘土複合体が膨潤性ケイ酸塩に下記一般式（１）

Y_nSiX_{4-n}　　（１）

（ただし、ｎは０～３の整数であり、Ｙは、炭素数１～２５の炭化水素基、及び炭素数１～２５の炭化水素基と置換基から構成される有機官能基であり、Ｘは加水分解性基および／または水酸基である。ｎ個のＹ、４－ｎ個のＸは、それぞれ同種でも異種でもよい。）で表されるシラン系化合物が導入される事により調製され、かつ樹脂組成物中のシラン粘土複合体の平均層厚が５００Å以下である、ポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項２】　シラン粘土複合体の最大層厚が２０００Å以下である、請求項１に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項３】　ポリカーボネート樹脂およびシラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物であって、シラン粘土複合体が膨潤性ケイ酸塩に下記一般式（１）

Y_nSiX_{4-n}　　（１）

（ただし、ｎは０～３の整数であり、Ｙは、炭素数１～２５の炭化水素基、及び炭素数１～２５の炭化水素基と置換基から構成される有機官能基であり、Ｘは加水分解性基および／または水酸基である。ｎ個のＹ、４－ｎ個のＸは、それぞれ同種でも異種でもよい。）で表されるシラン系化合物が導入される事により調製され、かつ樹脂組成物中のシラン粘土複合体の平均アスペクト比（層長さ／層厚の比）が１０～３００であり、かつ［Ｎ］値が３０以上であり、ここで［Ｎ］値が、樹脂組成物の面積１００μm^2中に存在する、シラン粘土複合体の単位比率当たりの粒子数であると定義される、ポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項４】　［Ｎ］値が３０以上であり、ここで［Ｎ］値が、樹脂組成物

の面積１００μm^2中に存在する、シラン粘土複合体の単位比率当たりの粒子数であると定義される、請求項１または２に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項５】　樹脂組成物中のシラン粘土複合体の平均アスペクト比（層長さ／層厚の比）が１０～３００である、請求項１または２に記載のポリカーボネート樹脂組成物。

【請求項６】　（Ａ）シラン粘土複合体と分散媒を含む粘土分散体を調製する工程、

（Ｂ）ポリカーボネート樹脂の重合性プレポリマーと上記の粘土分散体とを混合する工程、

（Ｃ）重合性プレポリマーを重合する工程を包含する、請求項１、２、３、４または５に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【請求項７】　工程（Ａ）で得られる粘土分散体中のシラン粘土複合体の底面間隔が、膨潤性ケイ酸塩の底面間隔の３倍以上であることを特徴とする、請求項６に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【０００１】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ポリカーボネート樹脂およびシラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物および該樹脂組成物の製造方法に関する。

【０００２】

【従来の技術】

ポリカーボネート樹脂はその透明性と耐衝撃性、寸法安定性および耐熱性を利用して、精密機械部品、自動車部品、ＯＡ機器部品など、種々の分野で広く用いられているが、更に高い機械的特性や耐熱性が求められている。そのような目的から、様々な充填剤、例えばガラス繊維、炭素繊維、チタン酸カリウムウィスカーなどの繊維状無機物、ガラスフレーク、ガラスビーズ、タルク、マイカ、カオリンなどの粒子状無機物などの配合が行われてきた。上記無機物の配合によって、機械的特性などは確かに改善されるものの、ポリカーボネート樹脂の大きな特

長である透明性の他、成形品の表面外観も損なわれ、比重が増加するなどの問題があった。更に別の問題としては、射出成形時、繊維状無機物の配向によって、異方性が生じる問題もあった。

【０００３】

こうした繊維状無機物や粒子状無機物の配合における欠点は、一般に、該無機物の分散不良や分散粒子のサイズが大きすぎることに起因するものと考えられている。

【０００４】

無機物の微分散化技術としては、国際公開公報９５－０６０９０号、米国特許５５１４７３４号、国際公開公報９３－０４１１８号および国際公開公報９３－１１１９０号に開示されている方法が挙げられる。該公報によれば、シラン系化合物などの有機金属化合物等が結合し、平均層厚が約５０Å以下であり、かつ最大層厚が約１００Å以下である層状粒子等と樹脂マトリックスを含有する樹脂複合材料に関する発明が開示されており、シラン系化合物で処理したモンモリロナイトおよび樹脂マトリックスとしてナイロン６からなるナイロン６系複合材料が開示されている。上記技術によれば、カプロラクタムが共重合されたイソシアネートプロピルトリエトキシシラン他が結合したモンモリロナイトおよびナイロン６からなるナイロン６系複合材料の引張弾性率が単独のナイロン６に比べて改善されてはいるが、決して充分なものではない。

【０００５】

【発明が解決しようとする課題】

上記のようにナイロン６系複合材料は開示されているが、ナイロン６系での方法をポリカーボネート樹脂に直接適用することによって、層状粒子が微分散化したポリカーボネート樹脂複合材料とする事は困難であった。

【０００６】

一方、特開平９－１１８７９２号公報では、ポリプロピレン系樹脂やビニル系高分子に層状粒子を一枚一枚に分離して分子状に分散させた場合、層状粒子はラミネート構造を形成し、等方的な物性を発現しにくくなる事（粘土科学、３０巻（２）、１４３～１４７（１９９０））、またそれ自体もともと高い弾性率を有

する層状粒子が単位層に近い状態に分離されると歪曲し、本来期待するほどの弾性率が得られない事が指摘されている。

【０００７】

また、本発明者らは、層状粒子を単位層に近い（単位層の層厚みは約１０Å）非常に薄い板状の構造でポリカーボネート樹脂中に含有せしめて複合材料を得、物性評価を実施したところ、押出溶融混練等の方法で層状粒子を積層・凝集状態のままでポリカーボネート樹脂中に含有せしめたものと比較すれば、機械的特性や荷重たわみ温度は改良されるが、その効果は決して十分なものではない事が判明した。

【０００８】

従って、層状ケイ酸塩を平均層厚が約５０Å以下かつ最大層厚が約１００Å以下というように単位層に近い状態で樹脂マトリックス中に分散せしめても、あるいは積層・凝集したままの状態で含有せしめても、何れの場合からも、機械的特性、荷重たわみ温度、透明性、表面性、寸法安定性および比重のバランスに優れたポリカーボネート樹脂組成物を得ることは困難である。物性バランスが良好なポリカーボネート樹脂組成物を得るためには、適した層厚を有する層状粒子を分散せしめる事が必須である。

【０００９】

しかし、その様な技術は未だ提供されていないのが現状であり、本発明の目的は、このような従来の問題を解決することにある。

【００１０】

【課題を解決するための手段】

本発明者らは、上記目的を達成する為に鋭意検討した結果、本発明に至った。すなわち、膨潤性ケイ酸塩の単位層同士を分離劈開し、１つの膨潤性ケイ酸塩の凝集粒子を非常に多数の極微小な薄板状の粒子に細分化して調製される薄板状のシラン粘土複合体が、ポリカーボネート樹脂中に含有されることによって得られる、ポリカーボネート樹脂組成物およびその製造方法である。

【００１１】

本発明によれば、請求項１のポリカーボネート樹脂組成物は、ポリカーボネー

ト樹脂およびシラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物であって、シラン粘土複合体が膨潤性ケイ酸塩に下記一般式（１）

Y_nSiX_{4-n}　　（１）

（ただし、ｎは０～３の整数であり、Ｙは、炭素数１～２５の炭化水素基、及び炭素数１～２５の炭化水素基と置換基から構成される有機官能基であり、Ｘは加水分解性基および／または水酸基である。ｎ個のＹ、４－ｎ個のＸは、それぞれ同種でも異種でもよい。）で表されるシラン系化合物が導入される事により調製され、かつ樹脂組成物中のシラン粘土複合体の平均層厚が５００Å以下である。

【００１２】

請求項２のポリカーボネート樹脂組成物は、請求項１に記載のポリカーボネート樹脂組成物において、シラン粘土複合体の最大層厚が２０００Å以下である。

【００１３】

請求項３のポリカーボネート樹脂組成物は、ポリカーボネート樹脂およびシラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物であって、シラン粘土複合体が膨潤性ケイ酸塩に下記一般式（１）

Y_nSiX_{4-n}　　（１）

（ただし、ｎは０～３の整数であり、Ｙは、炭素数１～２５の炭化水素基、及び炭素数１～２５の炭化水素基と置換基から構成される有機官能基であり、Ｘは加水分解性基および／または水酸基である。ｎ個のＹ、４－ｎ個のＸは、それぞれ同種でも異種でもよい。）で表されるシラン系化合物が導入される事により調製され、かつ樹脂組成物中のシラン粘土複合体の平均アスペクト比（層長さ／層厚の比）が１０～３００であり、かつ［Ｎ］値が３０以上であり、ここで［Ｎ］値が、樹脂組成物の面積１００μm^2中に存在する、シラン粘土複合体の単位比率当たりの粒子数であると定義される。

【００１４】

請求項４のポリカーボネート樹脂組成物は、請求項１または２に記載のポリカーボネート樹脂組成物において、［Ｎ］値が３０以上であり、ここで［Ｎ］値が、樹脂組成物の面積１００μm^2中に存在する、シラン粘土複合体の単位比率当たりの粒子数であると定義される。

【００１５】

請求項５のポリカーボネート樹脂組成物は、請求項１または２に記載のポリカーボネート樹脂組成物において、樹脂組成物中のシラン粘土複合体の平均アスペクト比（層長さ／層厚の比）が１０～３００である。

【００１６】

請求項６のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法は、請求項１、２、３、４または５に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法であって、（Ａ）シラン粘土複合体と分散媒を含む粘土分散体を調製する工程、（Ｂ）ポリカーボネート樹脂の重合性プレポリマーと上記の粘土分散体とを混合する工程、（Ｃ）重合性プレポリマーを重合する工程を包含する。

【００１７】

請求項７に記載のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法は、請求項６に記載の製造方法において、工程（Ａ）で得られる粘土分散体中のシラン粘土複合体の底面間隔が、膨潤性ケイ酸塩の底面間隔の３倍以上である。

【００１８】

【発明の実施の形態】

本発明で用いられるポリカーボネート樹脂は、特に限定されるものではなく、脂肪族、脂環族、芳香族ポリカーボネートのいずれも含むものであるが、中では芳香族ポリカーボネートが好ましい。芳香族ポリカーボネートは、多価フェノール類を含むことのある1種以上のビスフエノール類と、ビスアルキルカーボネート、ビスアリールカーボネート、ホスゲン等の炭酸エステル類との反応により製造される。ビスフエノール類としては、具体的にはビス(４－ヒドロキシフェニル)メタン、１，１－ビス(４－ヒドロキシフェニル)エタン、1，1－ビス(４－ヒドロキキシフェニル)プロパン、2，2－ビス(４－ヒドロキシフェニル)プロパンすなわちビスフエノールA、２，２－ビス(４－ヒドロキシフェニル)ブタン、２，２－ビス(４－ヒドロキシフェニル)ペンタン、２，２－ビス(４－ヒドロキシフェニル)－３－メチルブタン、２，２－ビス(４－ヒドロキシフェニル)ヘキサン、２，２－ビス(４－ヒドロキシフェニル)－４－メチルペンタン、１，１－ビス(４－ヒドロキシフェニル)

シクロペンタン、１，１－ビス(４－ヒドロキシフェニル)シクロヘキサン、ビス(４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル)メタン、ビス(４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル)フェニルメタン、１，１－ビス(４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル)エタン、２，２－ビス(４－ヒドロキシ－３－メチルフェニル)プロパン、２，２－ビス(４－ヒドロキシ－３－エチルフェニル)プロパン、２，２－ビス(４－ヒドロキシ－３－イソプロピルフェニル)プロパン、２，２－ビス(４－ヒドロキシ－３－ｓｅｃ－ブチルフェニル)プロパン、ビス(４－ヒドロキシフェニル)フェニルメタン、１，１－ビス(４－ヒドロキシフェニル)－１－フェニルエタン、１，１－ビス(４－ヒドロキシフェニル)－１－フェニルプロパン、ビス(４－ヒドロキシフェニル)ジフェニルメタン、ビス(４－ヒドロキシフェニル)ジベンジルメタン、４，４’－ジヒドロキシジフェニルエーテル、４，４’－ジヒドロキシジフェニルスルホン、４，４’－ジヒドロキシジフェニルスルフィド、４，４’－ジヒドロキシベンゾフェノン、フェノールフタレイン等が挙げられる。この中で最も代表的なものは、ビスフエノールＡである。

【００１９】

本発明に使用されるポリカーボネート樹脂の製造方法に制限はないが、ビスフエノール類のアルカリ金属塩と求核攻撃に活性な炭酸エステル誘導体とを原料とし生成ポリマーを溶解する有機溶剤とアルカリ水との界面にて重縮合反応させる界面重合法、ビスフエノール類と求核攻撃に活性な炭酸エステル誘導体とを原料としピリジン等の有機塩基中で重縮合反応させるピリジン法、ビスフエノール類とビスアルキルカーボネートやビスアリールカーボネート等の炭酸エステルとを原料としエステル交換反応によってポリカーボネートを生成させるエステル交換法が一般に知られている。ここで界面重合法とピリジン法で用いられる求核攻撃に活性な炭酸エステル誘導体としては、ホスゲン、カルボジイミダゾール等が挙げられ、中でもホスゲンが入手容易性から量も一般的である。エステル交換法に用いられる炭酸エステルの具体例については、ビスアルキルカーボネートとしてジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジ－ｎ－プロピルカーボネート、ジイソプロピルカーボネート、ジ－ｎ－ブチルカーボネート等が、ビスアリー

ルカーボネートとしてジフェニルカーボネート、ビス(２，４－ジクロロフェニル)カーボネート、ビス(２，４，６－トリクロロフェニル)カーボネート、ビス(２－ニトロフェニル)カーボネート、ビス(２－シアノフェニル)カーボネート、ビス(４－メチルフェニル)カーボネート、ビス(３－メチルフェニル)カーボネート、ジナフチルカーボネート等が挙げられる。この中で、原料入手容易性、反応容易性から、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジフェニルカーボネートが最も好ましく用いられる。

【００２０】

本発明で用いられるポリカーボネート樹脂の分子量には特に制限はないが、例えば、テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）溶媒によるゲルパーミエーションクロマトグラフィ（ＧＰＣ）において、４０℃で測定した重量平均分子量Ｍｗが、単分子量分散ポリスチレン換算で、１５，０００～８０，０００、好ましくは３０，０００～７０，０００である。Ｍｗが１５，０００未満であると得られる組成物の成形品の機械的特性や耐衝撃性が低くなる傾向があり、また８０，０００より大きい場合は成形時の流動性等の加工性に問題が生じる傾向がある。

【００２１】

本発明で用いられるシラン粘土複合体とは、膨潤性ケイ酸塩に下記一般式（１）

Y_nSiX_{4-n}　　（１）

（ただし、ｎは０～３の整数であり、Ｙは、炭素数１～２５の炭化水素基、及び炭素数１～２５の炭化水素基と置換基から構成される有機官能基であり、Ｘは加水分解性基および／または水酸基である。ｎ個のＹ、４－ｎ個のＸは、それぞれ同種でも異種でもよい。）

で表されるシラン系化合物が導入されているものである。

【００２２】

上記の膨潤性ケイ酸塩は、主として酸化ケイ素の四面体シートと、主として金属水酸化物の八面体シートから成り、その例としては、例えば、スメクタイト族粘土および膨潤性雲母などが挙げられる。膨潤性ケイ酸塩としてスメクタイト族

粘土および膨潤性雲母を使用する場合には、本発明のポリカーボネート樹脂組成物中における膨潤性ケイ酸塩の分散性、入手の容易さ及び樹脂組成物の物性改善の点から好ましい。

【００２３】

前記のスメクタイト族粘土は下記一般式（２）

$X_{0.2\sim0.6}Y_{2\sim3}Z_4O_{10}(OH)_2\cdot nH_2O$ （２）

（ただし、XはK、Ｎａ、１／２Ｃａ、及び１／２Ｍｇから成る群より選ばれる１種以上であり、YはＭｇ、Ｆｅ、Ｍｎ、Ｎｉ、Ｚｎ、Ｌｉ、Ａｌ、及びＣｒから成る群より選ばれる１種以上であり、ＺはＳｉ、及びＡｌから成る群より選ばれる１種以上である。尚、Ｈ２０は層間イオンと結合している水分子を表すが、ｎは層間イオンおよび相対湿度に応じて著しく変動する）で表される、天然または合成されたものである。該スメクタイト族粘土の具体例としては、例えば、モンモリロナイト、バイデライト、ノントロナイト、サポナイト、鉄サポナイト、ヘクトライト、ソーコナイト、スチブンサイト及びベントナイト等、またはこれらの置換体、誘導体、あるいはこれらの混合物が挙げられる。前記スメクタイト族粘土の初期の凝集状態における底面間隔は約１０～１７Åであり、凝集状態でのスメクタイト族粘土の平均粒径はおおよそ１０００Å～１０００００Åである。

【００２４】

また、前記の膨潤性雲母は下記一般式（３）

$X_{0.5\sim1.0}Y_{2\sim3}(Z_4O_{10})(F,OH)_2$ （３）

（ただし、XはＬｉ、Ｎａ、Ｋ、Ｒｂ、Ｃａ、Ｂａ、及びＳｒから成る群より選ばれる１種以上であり、YはＭｇ、Ｆｅ、Ｎｉ、Ｍｎ、Ａｌ、及びＬｉから成る群より選ばれる１種以上であり、ＺはＳｉ、Ｇｅ、Ａｌ、Ｆｅ、及びＢから成る群より選ばれる１種以上である。）で表される、天然または合成されたものである。これらは、水、水と任意の割合で相溶する極性溶媒、及び水と該極性溶媒の混合溶媒中で膨潤する性質を有する物であり、例えば、リチウム型テニオライト、ナトリウム型テニオライト、リチウム型四ケイ素雲母、及びナトリウム型四ケ

イ素雲母等、またはこれらの置換体、誘導体、あるいはこれらの混合物が挙げられる。前記膨潤性雲母の初期の凝集状態における底面間隔はおおよそ１０～１７Åであり、凝集状態での膨潤性雲母の平均粒径は約１０００～１０００００Åである。

【００２５】

上記の膨潤性雲母の中にはバーミキュライト類と似通った構造を有するものもあり、この様なバーミキュライト類相当品等も使用し得る。該バーミキュライト類相当品には３八面体型と２八面体型があり、下記一般式（４）

$(Mg,Fe,Al)_{2\sim3}(Si_{4-x}Al_x)O_{10}(OH)_2\cdot(M^+,M^{2+}_{1/2})_x\cdot nH_2O$　（４）

（ただし、ＭはＮａ及びＭｇ等のアルカリまたはアルカリ土類金属の交換性陽イオン、ｘ＝０．６～０．９、ｎ＝３．５～５である）で表されるものが挙げられる。前記バーミキュライトの初期の凝集状態における底面間隔はおおよそ１０～１７Åであり、凝集状態でのバーミキュライトの平均粒径は約１０００～５０００００Åである。

【００２６】

膨潤性ケイ酸塩は単独で用いても良く、２種以上組み合わせて使用しても良い。これらの内では、モンモリロナイト、ベントナイト、ヘクトライトおよび層間にナトリウムイオンを有する膨潤性雲母が、本発明のポリカーボネート樹脂組成物中での分散性、入手の容易さ及び樹脂組成物の物性改善効果の点から好ましい。

【００２７】

膨潤性ケイ酸塩の結晶構造は、ｃ軸方向に規則正しく積み重なった純粋度が高いものが望ましいが、結晶周期が乱れ、複数種の結晶構造が混じり合った、いわゆる混合層鉱物も使用され得る。

【００２８】

膨潤性ケイ酸塩に導入されるシラン系化合物とは、通常一般に用いられる任意のものが使用され得、下記一般式（１）

Y_nSiX_{4-n}　（１）

で表されるものである。一般式（１）中のｎは０～３の整数であり、Ｙは、置換基を有していても良い炭素数１～２５の炭化水素基である。炭素数１～２５の炭化水素基が置換基を有する場合の置換基の例としては、例えばエステル結合で結合している基、エーテル結合で結合している基、エポキシ基、アミノ基、カルボキシル基、末端にカルボニル基を有する基、アミド基、メルカプト基、スルホニル結合で結合している基、スルフィニル結合で結合している基、ニトロ基、ニトロソ基、ニトリル基、ハロゲン原子および水酸基などが挙げられる。これらの内の１種で置換されていても良く、２種以上で置換されていても良い。Ｘは加水分解性基および（または）水酸基であり、該加水分解性基の例としては、アルコキシ基、アルケニルオキシ基、ケトオキシム基、アシルオキシ基、アミノ基、アミノキシ基、アミド基、ハロゲン原子よりなる群から選択される１種以上である。一般式（１）中、ｎまたは４－ｎが２以上の場合、ｎ個のＹまたは４－ｎ個のＸはそれぞれ同種でも異種でも良い。

【００２９】

本明細書において炭化水素基とは、直鎖または分岐鎖（すなわち側鎖を有する）の飽和または不飽和の一価または多価の脂肪族炭化水素基、および芳香族炭化水素基、脂環式炭化水素基を意味し、例えば、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、フェニル基、ナフチル基、シクロアルキル基等が挙げられる。本明細書において、「アルキル基」という場合は、特に指示が無い限り「アルキレン基」等の多価の炭化水素基を包含することを意図する。同様にアルケニル基、アルキニル基、フェニル基、ナフチル基、及びシクロアルキル基は、それぞれアルケニレン基、アルキニレン基、フェニレン基、ナフチレン基、及びシクロアルキレン基等を包含する。

【００３０】

上記一般式（１）において、Ｙが炭素数１～２５の炭化水素基である場合の例としては、デシルトリメトキシシランの様に直鎖長鎖アルキル基を有するもの、メチルトリメトキシシランの様に低級アルキル基を有するもの、２－ヘキセニルトリメトキシシランの様に不飽和炭化水素基を有するもの、２－エチルヘキシルトリメトキシシランの様に側鎖を有するアルキル基を有するもの、フェニルトリ

エトキシシランの様にフェニル基を有するもの、３－β－ナフチルプロピルトリメトキシシランの様にナフチル基を有するもの、及びｐ－ビニルベンジルトリメトキシシランの様にアラルキル基を有するものが挙げられる。Ｙが炭素数１～２５の炭化水素基の中でも特にビニル基を有する基である場合の例としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリクロロシラン、及びビニルトリアセトキシシランが挙げられる。Ｙがエステル基で結合している基で置換されている基を有する基である場合の例としては、γ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシランが挙げられる。Ｙがエーテル基で結合している基で置換されている基を有する基である場合の例としては、γ－ポリオキシエチレンプロピルトリメトキシシラン、及び２－エトキシエチルトリメトキシシランが挙げられる。Ｙがエポキシ基で置換されている基である場合の例としては、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシランが挙げられる。Ｙがアミノ基で置換されている基である場合の例としては、γ－アミノプロピルトリメトキシシラン、γ－（２－アミノエチル）アミノプロピルトリメトキシシラン、及びγ－アニリノプロピルトリメトキシシランが挙げられる。Ｙが末端にカルボニル基を有する基で置換されている基である場合の例としては、γ－ユレイドプロピルトリエトキシシランが挙げられる。Ｙがメルカプト基で置換されている基である場合の例としては、γ－メルカプトプロピルトリメトキシシランが挙げられる。Ｙがハロゲン原子で置換されている基である場合の例としては、γ－クロロプロピルトリエトキシシランが挙げられる。Ｙがスルホニル基で結合している基で置換されている基を有する基である場合の例としては、γ－フェニルスルホニルプロピルトリメトキシシランが挙げられる。Ｙがスルフィニル基で結合している基で置換されている基を有する基である場合の例としては、γ－フェニルスルフィニルプロピルトリメトキシシランが挙げられる。Ｙがニトロ基で置換されている基である場合の例としては、γ－ニトロプロピルトリエトキシシランが挙げられる。Ｙがニトロソ基で置換されている基である場合の例としては、γ－ニトロソプロピルトリエトキシシランが挙げられる。Ｙがニトリル基で置換されている基である場合の例としては、γ－シアノエチルトリエトキシシランおよびγ－シアノプロピルトリエトキシシランが挙げられる。Ｙがカルボキシル基で置換されている基である場合の例としては、γ－（

４－カルボキシフェニル）プロピルトリメトキシシランが挙げられる。前記以外にＹが水酸基を有する基であるシラン系化合物もまた使用し得る。その様な例としては、Ｎ，Ｎ－ジ（２－ヒドロキシエチル）アミノ－３－プロピルトリエトキシシランが挙げられる。水酸基はまたシラノール基（ＳｉＯＨ）の形であり得る。

【００３１】

上記のシラン系化合物の置換体、または誘導体もまた使用し得る。これらのシラン系化合物は、単独、又は２種以上組み合わせて使用され得る。

【００３２】

シラン粘土複合体は、例えば、膨潤性ケイ酸塩を分散媒中で底面間隔を拡大させた後にシラン系化合物を添加する事により得られる。

【００３３】

上記の分散媒とは、水、水と相溶する極性溶媒、及び水と該極性溶媒の混合溶媒を意味する。該極性溶媒としては、例えば、メタノール、エタノール、イソプロパノール等のアルコール類、エチレングリコール、プロピレングリコール、１，４－ブタンジオール等のグリコール類、アセトン、メチルエチルケトン等のケトン類、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン等のエーテル類、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド等のアミド化合物、その他の溶媒としてピリジン、ジメチルスルホキシドやＮ－メチルピロリドン等が挙げられる。又、炭酸ジメチルや炭酸ジエチルような炭酸ジエステルも使用できる。これらの極性溶媒は単独で用いても良く２種類以上組み合わせて用いても良い。

【００３４】

膨潤性ケイ酸塩を分散媒中で底面間隔を拡大させることは、該膨潤性ケイ酸塩を該分散媒中で充分に撹拌して分散させる事によりなし得る。拡大後の底面間隔は初期の膨潤性ケイ酸塩の底面間隔に比べて、好ましくは３倍以上であり、より好ましくは４倍以上であり、特に好ましくは５倍以上である。上限値は特にない。ただし、底面間隔が約１０倍以上に拡大すると、底面間隔の測定が困難になるが、この場合、膨潤性ケイ酸塩は実質的に単位層で存在する。

【００３５】

ここで、本明細書において、膨潤性ケイ酸塩の初期の底面間隔とは、分散媒に添加する前の、単位層が互いに積層し凝集状態である粒子状の膨潤性ケイ酸塩の底面間隔である事を意図する。

【００３６】

底面間隔は小角Ｘ線回折法（ＳＡＸＳ）などで求めることが出来る。すなわち、分散媒と膨潤性ケイ酸塩を含む分散体におけるＸ線回折ピーク角値をＳＡＸＳで測定し、該ピーク角値をＢｒａｇｇの式に当てはめて算出することにより底面間隔を求め得る。

【００３７】

膨潤性ケイ酸塩の底面間隔を効率的に拡大させるためには、数千ｒｐｍ以上で撹拌するか、以下に示す物理的な外力を加える方法が挙げられる。物理的な外力は、一般に行われるフィラーの湿式微粉砕方法を用いることによって加えられ得る。一般的なフィラーの湿式微粉砕方法としては、例えば、硬質粒子を利用する方法が挙げられる。この方法では、硬質粒子と膨潤性ケイ酸塩と任意の溶媒とを混合して撹拌し、硬質粒子と膨潤性ケイ酸塩との物理的な衝突によって、膨潤性ケイ酸塩を分離させる。通常用いられる硬質粒子はフィラー粉砕用ビーズであり、例えば、ガラスビーズまたはジルコニアビーズ等が挙げられる。これら粉砕用ビーズは、膨潤性ケイ酸塩の硬度、または撹拌機の材質を考慮して選択され、上述したガラスまたはジルコニアに限定されない。その粒径もまた、膨潤性ケイ酸塩のサイズなどを考慮して決定されるために一概に数値で限定されるものではないが、直径０．１～６．０ｍｍの範囲にあるものが好ましい。ここで用いる溶媒は特に限定されないが、例えば、上記の分散媒が好ましい。

【００３８】

上記のように、膨潤性ケイ酸塩の底面間隔を拡大して、凝集状態であった層を劈開してばらばらにし、個々独立に存在させた後にシラン系化合物を添加して撹拌する。この様に、劈開された膨潤性ケイ酸塩の層の表面に該シラン系化合物を導入する事によってシラン粘土複合体が得られる。

【００３９】

シラン系化合物の導入は、分散媒を用いる方法の場合は、底面間隔が拡大され

た膨潤性ケイ酸塩と分散媒を含む分散体中にシラン系化合物を添加して撹拌することにより行われ得る。シラン系化合物をより効率的に導入したい場合は、撹拌の回転数を１０００ｒｐｍ以上、好ましくは１５００ｒｐｍ以上、より好ましくは２０００ｒｐｍ以上にするか、あるいは湿式ミルなどを用いて５００（１／ｓ）以上、好ましくは１０００（１／ｓ）以上、より好ましくは１５００（１／ｓ）以上の剪断速度を加える。回転数の上限値は約２５０００ｒｐｍであり、剪断速度の上限値は約５００００（１／ｓ）である。上限値よりも大きい値で撹拌を行ったり、剪断を加えても効果はそれ以上変わらない傾向があるため、上限値よりも大きい値で撹拌を行う必要はない。

【００４０】

物理的外力を用いる方法の場合、膨潤性ケイ酸塩に物理的外力を加えながら（例えば、湿式粉砕しながら）そこにシラン系化合物を加えることによって、シラン系化合物を導入し得る。

【００４１】

あるいは、物理的外力によって底面間隔が拡大された膨潤性ケイ酸塩を分散媒中に加え、上記の分散媒を用いる方法の場合と同様に、そこにシラン系化合物を添加することによって、シラン系化合物を膨潤性ケイ酸塩に導入することもできる。

【００４２】

膨潤性ケイ酸へのシラン系化合物の導入は、底面間隔が拡大した膨潤性ケイ酸塩の表面に存在する水酸基と、シラン系化合物の加水分解性基および（または）水酸基とが反応する事によって、膨潤性ケイ酸塩にシラン系化合物が導入され得る。

【００４３】

膨潤性ケイ酸塩中に導入されたシラン系化合物がさらに水酸基、カルボキシル基、アミノ基、エポキシ基、あるいはビニル基などの様な反応活性な官能基を有している場合、この様な反応活性基と反応できる化合物を更に添加して、この化合物をこの反応活性基と反応させることも可能である。この様にして膨潤性ケイ酸塩に導入されたシラン系化合物の官能基鎖の鎖長を長くしたり、極性を変える

ことができる。この場合、添加される化合物としては上記のシラン系化合物自体も用いられ得るが、それらに限定されることなく、目的に応じて任意の化合物が用いられ得、例えば、エポキシ基含有化合物、アミノ基含有化合物、カルボキシル基含有化合物、酸無水物基含有化合物、及び水酸基含有化合物等が挙げられる。

【００４４】

反応は室温で充分に進行するが、必要に応じて加温しても良い。加温時の最高温度は用いるシラン系化合物の分解温度未満であり、かつ分散媒の沸点未満で有れば任意に設定されうる。

【００４５】

シラン系化合物の使用量は、粘土分散体におけるシラン粘土複合体の分散性、シラン粘土複合体と樹脂との親和性、ポリカーボネート樹脂組成物中でのシラン粘土複合体の分散性が十分に高まるように調製し得る。必要であるならば、異種の官能基を有する複数種のシラン系化合物を併用し得る。従って、シラン系化合物の添加量は一概に数値で限定されるものではないが、膨潤性ケイ酸塩１００重量部に対して、０．１から２００重量部であり、好ましくは０．２から１８０重量部であり、より好ましくは０．３から１６０重量部であり、更に好ましくは０．４から１４０重量部であり、特に好ましくは０．５から１２０重量部である。シラン系化合物の量が０．１重量部未満であると得られるシラン粘土複合体の微分散化効果が充分で無くなる傾向がある。また、２００重量部以上では効果が変わらないので、２００重量部より多く添加する必要はない。

【００４６】

上記のようにして得られるシラン粘土複合体の底面間隔は、導入されたシラン系化合物の存在により、膨潤性ケイ酸塩の初期の底面間隔に比べて拡大し得る。例えば、分散媒中に分散されて底面間隔が拡大された膨潤性ケイ酸塩は、シラン系化合物を導入しない場合、分散媒を除去すると再び層同士が凝集した状態に戻るが、本発明によれば、底面間隔を拡大した後にシラン系化合物を導入することによって、分散媒を除去した後も、得られるシラン粘土複合体は層同士が凝集することなく底面間隔が拡大された状態で存在し得る。シラン粘土複合体の底面間

隔は膨潤性ケイ酸塩の初期の底面間隔に比べて、１．３倍以上、好ましくは１．５倍以上、更に好ましくは１．７倍以上、特に好ましくは２倍以上拡大している。このように、シラン系化合物が導入されることにより、および底面間隔が拡大されることにより、シラン粘土複合体と樹脂との親和性を高めることができる。

【００４７】

ここで、シラン系化合物が膨潤性ケイ酸塩に導入された事は種々の方法で確認し得る。確認の方法としては、例えば、以下の方法が挙げられる。

まず、テトラヒドロフランやクロロホルムなどの有機溶剤を用いてシラン粘土複合体を洗浄する事によって、単に吸着しているシラン系化合物を洗浄し除去する。洗浄後のシラン粘土複合体を乳鉢などで粉体状にしたのち充分に乾燥する。次いで、シラン粘土複合体を粉末状の臭化カリウム（ＫＢｒ）等のような窓材質と所定の比率で充分に混合して加圧錠剤化し、フーリエ変換（ＦＴ）－ＩＲを用い、透過法等により、シラン系化合物に由来する吸収帯を測定する。より正確に測定することが所望される場合、あるいは導入されたシラン系化合物量が少ない場合には、充分に乾燥した粉末状のシラン粘土複合体をそのまま拡散反射法（ＤＲＩＦＴ）で測定することが望ましい。

【００４８】

また、シラン粘土複合体の底面間隔が膨潤性ケイ酸塩よりも拡大している事は、種々の方法で確認し得る。確認の方法としては、例えば、以下の方法が挙げられる。

【００４９】

すなわち、上記と同様にして、吸着しているシラン系化合物を有機溶媒で洗浄してシラン粘土複合体から除去し、乾燥した後に、小角Ｘ線回折法（ＳＡＸＳ）などで確認し得る。この方法では、粉末状のシラン粘土複合体の（００１）面に由来するＸ線回折ピーク角値をＳＡＸＳで測定し、Ｂｒａｇｇの式に当てはめて算出することにより底面間隔を求め得る。同様に初期の膨潤性ケイ酸塩の底面間隔を測定し、この両者を比較することにより底面間隔の拡大を確認し得る。

【００５０】

前記のように、有機溶剤で洗浄した後に、添加したシラン系化合物に由来する吸収帯がＦＴ－ＩＲ等で観測され、かつ底面間隔が原料の膨潤性ケイ酸塩よりも拡大していることをＳＡＸＳ等で測定することにより、シラン粘土複合体が生成していることが判る。

【００５１】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物において、ポリカーボネート樹脂１００重量部に対するシラン粘土複合体の配合量が、代表的には０．１～５０重量部、好ましくは０．２～４５重量部、より好ましくは０．３～４０重量部、更に好ましくは０．４～３５重量部、特に好ましくは０．５～３０重量部となるように調製される。シラン粘土複合体の配合量が０．１重量部未満であると機械的特性、荷重たわみ温度、異方性の改善効果が不充分となる場合があり、５０重量部を超えると成形体の外観や透明性が損なわれる傾向がある。

【００５２】

また、シラン粘土複合体に由来するポリカーボネート樹脂組成物の灰分率が、代表的には０．１～３０重量％、好ましくは０．２～２８重量％、より好ましくは０．３～２５重量％、更に好ましくは０．４～２３重量％、特に好ましくは０．５～２０重量％と成るように調製される。灰分率が０．１重量％未満であると機械的特性、荷重たわみ温度、異方性の改善効果が不充分となる場合があり、３０重量％を超えると成形体の外観や透明性が損なわれる傾向がある。

【００５３】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中で分散しているシラン粘土複合体の構造は、配合前の膨潤性ケイ酸塩が有していたような、層が多数積層したμｍサイズの凝集構造とは全く異なる。すなわち、マトリックス樹脂と親和性を有するシラン系化合物が導入され、かつ初期の膨潤性ケイ酸塩に比べて底面間隔が拡大されたシラン粘土複合体を用いることによって、層同士が劈開し、互いに独立して細分化する。その結果、シラン粘土複合体はポリカーボネート樹脂組成物中で非常に細かく互いに独立した薄板状で分散し、その数は、原料である膨潤性ケイ酸塩に比べて著しく増大する。この様な薄板状のシラン粘土複合体の分散状態は以下に述べるアスペクト比（層長さ／層厚の比率）、分散粒子数、最大層厚および

平均層厚で表現され得る。

【００５４】

まず、平均アスペクト比を、樹脂中に分散したシラン粘土複合体の層長さ／層厚の比の数平均値であると定義すると、本発明のポリカーボネート樹脂組成物中のシラン粘土複合体の平均アスペクト比は１０～３００であり、好ましくは１５～３００であり。更に好ましくは２０～３００である。シラン粘土複合体平均アスペクト比が１０未満であると、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の弾性率や荷重たわみ温度への改善効果が十分に得られない場合がある。また、３００より大きくても効果はそれ以上変わらないため、平均アスペクト比を３００より大きくする必要はない。

【００５５】

また、［Ｎ］値を、ポリカーボネート樹脂組成物の面積１００μｍ２における、膨潤性ケイ酸塩の単位重量比率当たりの分散粒子数であると定義すると、本発明のポリカーボネート樹脂組成物におけるシラン粘土複合体の［Ｎ］値は、３０以上であり、好ましくは４５以上であり、より好ましくは６０以上である。上限値は特にないが、［Ｎ］値が１０００程度を越えると、それ以上効果は変わらなくなるので、１０００より大きくする必要はない。［Ｎ］値は、例えば、次のようにして求められ得る。すなわち、ポリカーボネート樹脂組成物を約５０μｍ～１００μｍ厚の超薄切片に切り出し、該切片をＴＥＭ等で撮影した像上で、面積が１００μm^2の任意の領域に存在するシラン粘土複合体の
粒子数を、用いた膨潤性ケイ酸塩の重量比率で除すことによって求められ得る。あるいは、ＴＥＭ像上で、１００個以上の粒子が存在する任意の領域（面積は測定しておく）を選んで該領域に存在する粒子数を、用いた膨潤性ケイ酸塩の重量比率で除し、面積１００μm^2に換算した値を［Ｎ］値としてもよい。
従って、［Ｎ］値はポリカーボネート樹脂組成物のＴＥＭ写真等を用いることにより定量化できる。

【００５６】

また、平均層厚を、薄板状で分散したシラン粘土複合体の層厚みの数平均値であると定義すると、本発明のポリカーボネート樹脂組成物中のシラン粘土複合体

の平均層厚の上限値は５００Å以下であり、好ましくは４５０Å以下であり、より好ましくは４００Å以下である。平均層厚が５００Åより大きいと、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の機械的特性や荷重たわみ温度および異方性の改良効果が十分に得られない場合がある。平均層厚の下限値は特に限定されないが、好ましくは５０Åより大きく、より好ましくは６０Å以上であり、更に好ましくは７０Å以上である。

また、最大層厚を、本発明のポリカーボネート樹脂組成物中に薄板状に分散したシラン粘土複合体の層厚みの最大値であると定義すると、シラン粘土複合体の最大層厚の上限値は、２０００Å以下であり、好ましくは１８００Å以下であり、より好ましくは１５００Å以下である。最大層厚が２０００Åより大きいと、本発明のポリカーボネート樹脂組成物の機械的特性、荷重たわみ温度、異方性、透明性、表面性のバランスが損なわれる場合がある。シラン粘土複合体の最大層厚の下限値は特に限定されないが、好ましくは１００Åより大きく、より好ましくは１５０Å以上であり、更に好ましくは２００Å以上である。　層厚および層長さは、本発明のポリカーボネート樹脂組成物を加熱溶融した後に、熱プレス成形あるいは延伸成形して得られるフィルム、および溶融樹脂を射出成形して得られる薄肉の成形品等を、顕微鏡等を用いて撮影される像から求めることができる。

【００５７】

すなわち、いま仮に、Ｘ－Ｙ面上に上記の方法で調製したフィルムの、あるいは肉厚が約０．５～２ｍｍ程度の薄い平板状の射出成形した試験片を置いた
と仮定する。上記のフィルムあるいは試験片をＸ－Ｚ面あるいはＹ－Ｚ面と平行な面で約５０μｍ～１００μｍ厚の超薄切片を切り出し、該切片を透過型電子顕微鏡などを用い、約４～１０万倍以上の高倍率で観察して求められ得る。測定は、上記の方法で得られた透過型電子顕微鏡の象上に置いて、１００個以上のシラン粘土複合体を含む任意の領域を選択し、画像処理装置などで画像化し、計算機処理する事等により定量化できる。あるいは、定規などを用いて計測しても求めることもできる。

【００５８】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法には特に制限はないが、例え

ば、（Ａ）シラン粘土複合体と分散媒を含む粘土分散体を調製する工程、（Ｂ）ポリカーボネート樹脂の重合性プレポリマーと上記の粘土分散体とを混合する工程、（Ｃ）重合性プレポリマーを重合する工程、を包含する方法が好ましい。

【００５９】

上記の工程（Ａ）で用いられる分散媒とは、水、水と相溶する極性溶媒または水と該極性溶媒の混合溶媒を意味する。

【００６０】

粘土分散体の調製方法は特に限定されず、例えば、シラン粘土複合体を調製した際に得られる、分散媒とシラン粘土複合体を含む系をそのまま粘土分散体として用いる方法（直接法と称す：この場合は、シラン粘土複合体を調製する事が工程（Ａ）となる）、または、シラン粘土複合体を調製した際に得られる、分散媒とシラン粘土複合体を含む系に、他の所望の分散媒を添加混合してから置換する事により、新たに加えた所望の分散媒とシラン粘土複合体から成る系を粘土分散体として用いる方法（置換法と称す）、あるいは、分散媒を乾燥除去して得られるシラン粘土複合体と所望の分散媒を充分に混合する方法等が挙げられる。シラン粘土複合体の分散性の点からは直接法および置換法が好ましいが、もちろん混合法も採用できる。

【００６１】

尚、混合を効率よく行うためには、撹拌の回転数は５００ｒｐｍ以上、あるいは３００（１／ｓ）以上の剪断速度を加える。回転数の上限値は２５０００ｒｐｍであり、剪断速度の上限値は５００００（１／ｓ）である。上限値よりも大きい値で撹拌を行っても効果はそれ以上変わらない傾向があるため、上限値より大きい値で撹拌を行う必要はない。

【００６２】

工程（Ａ）で得られる粘土分散体に含まれるシラン粘土複合体は、膨潤性ケイ酸塩が有していたような初期の積層・凝集構造はほぼ完全に消失して薄板状に細分化するか、あるいは層同士の間隔が拡大していわゆる膨潤状態となる。膨潤状態を表す指標として底面間隔が用いられ得る。粘土分散体中のシラン粘土複合体の底面間隔は、シラン粘土複合体が細分化して薄板状に成るためには、膨潤性ケ

イ酸塩の初期の底面間隔の３倍以上が好ましく、４倍以上がより好ましく、５倍以上更に好ましい。

【００６３】

次に、工程（Ｂ）、すなわち、上記の粘土分散体およびポリカーボネート樹脂の重合性プレポリマーとを混合する工程を行う。ここで、上記の重合性プレポリマーとは、重合性モノマーおよび低重合度体から選ばれる１種以上を意味する。ポリカーボネート樹脂の重合性モノマーとは、ビスフェノール類、及び炭酸エステル類を意味する。また、ポリカーボネート樹脂の低重合度体とは、上記重合性モノマーの反応により得られる縮合物であり、かつ、溶融状態においてシラン粘土複合体を含む粘土分散体が充分に均一分散できる程度の溶融粘度となる分子量を有するものを意味する。

【００６４】

上記の低重合度体を得る方法としては特に限定されず、界面重合法、ピリジン法、エステル交換法いずれをも採用できるが、中では、エステル交換法による低重合体が好ましい。また、低重合体は、ポリカーボネート樹脂を解重合することによっても得られる。

【００６５】

粘土分散体と重合性プレポリマーとの混合の方法は特に限定されず、例えば、溶融状態または溶液にした重合性プレポリマーおよび粘土分散体を一括混合する方法や、溶融状態の重合性プレポリマーに粘土分散体を連続的に添加する方法が挙げられる。連続的に添加する場合、粘土分散体の添加速度は特に限定されないが重合性プレポリマー１００重量部に対して、粘土分散体を０．０２～４．０重量部／分、好ましくは０．０３～３．８重量部／分、より好ましくは０．０５～３．５重量部／分で連続的に添加する。

【００６６】

そして工程（Ｃ）、すなわち、重合性プレポリマーを重合する工程を行い得る。重合方法は特に限定されず、通常一般に行われるポリカーボネート樹脂の重合方法によってなし得るが、操作性等から、エステル交換法が好ましく採用される。

エステル交換法では、炭酸ジエステル化合物を含む混合物に、ビスフエノール化合物を加えて、十分に撹幹しながら系を約２８０から３００℃付近にまで加熱して、溶融状態でエステル交換反応させる。エステル交換法に必要な触媒としては、アルカリ金属またはアルカリ土類金属の単体・酸化物、水酸化物、アミド化合物、アルコラート、フェノラートの他、Ｓｂ２Ｏ３、ＺｎＯ、ＰｂＯ、有機チタン化合物、第４級アンモニウム塩等の１種または２種以上を添加して使用し得る。

【００６７】

工程（Ｃ）で得られるポリカーボネート樹脂の分子量は、テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）溶媒によるゲルパーミエーシヨンクロマトグラフィ（ＧＰＣ）において、４０℃で測定した重量平均分子量Ｍｗが、単分子量分散ポリスチレン換算で、１５，０００～８０，０００、好ましくは３０，０００～７０，０００である。

【００６８】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は以下に示す方法によっても製造され得る。

【００６９】

まず、塩化メチレン、クロロホルム、テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）などの、ポリカーボネート樹脂の良溶媒と予め調製したシラン粘土複合体を十分に混合する。混合時の撹拌数等は上記の条件と同様であり、混合後のシラン粘土複合体の底面間隔は、膨潤性ケイ酸塩の初期の底面間隔の３倍以上が好ましく、４倍以上がより好ましく、５倍以上更に好ましい。次いで、ポリカーボネート樹脂を添加溶解させ、十分に混合した後に溶媒を除去する事によって、ポリカーボネート樹脂組成物が得られる。

本発明のポリカーボネート樹脂組成物の機械的特性、荷重たわみ温度に優れ、異方性が小さく、かつ、表面外観や透明性を損なわない理由は、樹脂中にシラン粘土複合体が、多数の微小な薄板状粒子となって分散し、その分散状態の指標となるシラン粘土複合体の平均層厚、最大層厚、分散粒子数および平均アスペクト

比が前述した範囲になっているためである。

【００７０】

シラン粘土複合体の分散状態は、シラン粘土複合体の調製工程、上記のポリカーボネート樹脂組成物の製造方法における工程（Ａ）および工程（Ｂ）から選ばれる１種以上の工程によって制御され得る。

【００７１】

すなわち、例えば、シラン粘土複合体を調製する工程（すなわち、工程（Ａ）における直接法である）において、膨潤性ケイ酸塩を分散させる際の撹拌力や剪断力が一定であるならば、分散媒の種類、複数種の分散媒を用いる場合はその混合比率および混合の順番に伴って、膨潤性ケイ酸塩の膨潤・劈開の状態は変化する。例えば、膨潤性ケイ酸塩としてモンモリロナイトを用いた場合、分散媒が水のみでは、モンモリロナイトはほぼ単位層に近い状態にまで膨潤・劈開するので、その状態でアミノ基、メルカプト基またはニトリル基等の極性が高い基を有するシラン系化合物を反応させれば、ほぼ単位層厚のシラン粘土複合体が分散した分散体が調製される。一方、エタノール、テトラヒドロフラン（ＴＨＦ）、メチルエチルケトン（ＭＥＫ）やピリジン、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド（ＤＭＦ）、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド（ＤＭＡｃ）、Ｎ－メチルピロリドン（ＮＭＰ）等の極性溶媒と水との混合溶媒を分散媒とした場合や、該極性溶媒にモンモリロナイトを分散させ次いで水を加える等した場合は、約数枚～約百数十枚程度の単位層が積層した状態に劈開、細分化する。その状態でシラン系化合物を反応させれば、ほぼ数枚～約百数十枚分の厚みを有するシラン粘土複合体が分散した分散体が調製される。それらの状態を保持するように、ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法における工程（Ａ）、（Ｂ）および（Ｃ）を行う事によってシラン粘土複合体の分散状態を制御し得る。　工程（Ａ）における置換法（シラン粘土複合体の調製時に用いた分散媒を他の所望の分散媒と置換する方法）では、新たに加える分散媒の種類、複数種の分散媒を用いる場合はその混合比率および混合の順番によって、粘土分散体中でのシラン粘土複合体の分散状態は変化する。例えば、単位層状態のシラン粘土複合体を含有する水マトリックスの分散体に、シラン系化合物の官能基と親和性が低い極性溶媒を加えて水と置換すると、単位

層状態であったシラン粘土複合体は約数枚～約数十枚が凝集し、積層化し得る。それらの状態を保持するように、ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法における工程（Ｂ）および（Ｃ）を行う事によってシラン粘土複合体の分散状態を制御し得る。

また、工程（Ｂ）では、粘土分散体と混合される重合性プレポリマーの種類や分子量等でシラン粘土複合体の分散状態は変化する。

それらの状態を保持するように、ポリカーボネート樹脂組成物の製造方法における工程（Ｃ）を行う事によってシラン粘土複合体の分散状態を制御し得る。　本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、必要に応じて、ポリブタジエン、ブタジエンースチレン共重合体、アクリルゴム、アイオノマー、エチレンープロピレン共重合体、エチレンープロピレンージエン共重合体、天然ゴム、塩素化ブチルゴム、αーオレフィンの単独重合体、２種以上のαーオレフィンの共重合体（ランダム、ブロック、グラフトなど、いずれの共重合体も含み、これらの混合物であっても良い）、またはオレフィン系エラストマー等の熱可塑性エラストマーなどの耐衝撃性改良剤を添加することができる。これらは無水マレイン酸等の酸化合物、またはグリシジルメタクリレート等のエポキシ化合物で変性されていても良い。また、機械的特性、成形性などの特性を損なわない範囲で、他の任意の樹脂、例えば、ポリエステル樹脂、ポリエステルカーボネート樹脂、液晶ポリエステル樹脂、ポリオレフィン樹脂、スチレン系樹脂、ゴム質重合体強化スチレン系樹脂、ポリアミド樹脂、ポリフェニレンスルフィド樹脂、ポリフェニレンエーテル樹脂、ポリアセタール樹脂、ポリサルフォン樹脂、ポリイミド、ポリエーテルイミド樹脂、及びポリアリレート樹脂等の熱可塑性樹脂や、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、及びフェノールノボラック樹脂等の熱硬化性樹脂の単独または２種以上を組み合わせて使用し得る。

【００７２】

更に、本発明のポリカーボネート樹脂組成物には、目的に応じて、顔料や染料、熱安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、滑剤、可塑剤、難燃剤、及び帯電防止剤等の添加剤を添加することができる。本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、射出成形や押出成形、熱プレス成形で成形しても良く、ブロー成形

にも使用できる。

【００７３】

また、本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、透明性が維持されかつ機械的特性に優れるフィルムにも利用できる。そのような成形品やフィルムは外観、機械的特性および耐熱変形性等に優れる為、例えば、自動車部品、家庭用電気製品部品、精密機械部品、家庭日用品、包装・容器資材、電気磁気基材、その他一般工業用資材に好適に用いられる。

【００７４】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物中ではシラン粘土複合体が非常に細かく、かつ薄い板状で均一分散していることから、透明性や表面外観を損なうことなく、また、比重を著しく増加させる事無く、弾性率や荷重たわみ温度を改善し、異方性を抑制することができる。

【００７５】

【実施例】

以下実施例により本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

【００７６】

実施例、及び比較例で使用する主要原料を以下にまとめて示す。尚、特に断らない場合は、原料の精製は行っていない。

（原料）

・ポリカーボネート樹脂：出光石化（株）製、タフロンＡ２２００（以下ＰＣ樹脂）

・テトラヒドロフラン：和光純薬（株）製のテトラヒドロフラン（以下ＴＨＦ）を用いた。

・炭酸ジメチル：和光純薬（株）製の炭酸ジメチル（以下ＤＭＣ）を用いた。・炭酸ジエチル：和光純薬（株）製の炭酸ジエチル（以下ＤＥＣ）を用いた。・ビスフェノールＡ：三井化学（株）製のビスフェノールＡ（以下ＢＰＡ）を用いた。

・モンモリロナイト：山形県産の天然モンモリロナイト（底面間隔＝１３Å）を

用いた。

・膨潤性雲母：タルク２５．４ｇとケイフッ化ナトリウム４．７ｇの微粉砕物を混合し、８００℃で加熱処理したものを用いた（底面間隔＝１２Å）。

・ガラス繊維：日本電気硝子（株）製、Ｔ－１９５Ｈ（以下ＧＦ）

・γ-(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン：日本ユニカー（株）製、Ａ－１１２０（以降、Ａ１１２０と称す）

・γ－（ポリオキシエチレン）プロピルトリメトキシシラン：日本ユニカー（株）製、Ａ－１２３０（以降、Ａ１２３０と称す）

また、実施例および比較例における評価方法を以下にまとめて示す。

（ＦＴ－ＩＲ）

シラン粘土複合体１．０ｇをテトラヒドロフラン（ＴＨＦ）５０ｍｌに添加し、２４時間撹拌して吸着しているシラン系化合物を洗浄・除去した後、遠心分離を行い上澄みを分離した。この洗浄操作を３回繰り返した。洗浄後、十分に乾燥したシラン粘土複合体約１ｍｇとＫＢｒ粉末約２００ｍｇとを乳鉢を用いて充分に混合した後、卓上プレスを用いて測定用のＫＢｒディスクを作製した。ついで赤外分光器（島津製作所（株）製、８１００Ｍ）を用いて透過法で測定した。検出器は液体窒素で冷却したＭＣＴ検出器を用い、分解能は４ｃｍ$^{-1}$、スキャン回数は１００回とした。

（分散状態の測定）

シラン粘土複合体に関しては、ＴＥＭを用いて以下のように行った。

【００７７】

厚み５０～１００μｍの超薄切片を用いた。透過型電子顕微鏡（日本電子ＪＥＭ－１２００ＥＸ）を用い、加速電圧８０ｋＶで倍率４万～１００万倍でシラン粘土複合体の分散状態を観察撮影した。ＴＥＭ写真において、１００個以上の分散粒子が存在する領域を選択し、粒子数（［Ｎ］値）、層厚および層長を、目盛り付きの定規を用いた手計測または、必要に応じてインタークエスト社の画像解析装置ＰＩＡＳIIIを用いて処理する事により測定した。

平均アスペクト比は個々のシラン粘土複合体の層長と層厚の比の数平均値とした

。

［Ｎ］値の測定は以下のようにして行った。まず、ＴＥＭ像上で、選択した領域に存在するシラン粘土複合体の粒子数を求める。これとは別に、シラン粘土複合体に由来する樹脂組成物の灰分率を測定する。上記粒子数を灰分率で除し、面積１００μm^2に換算した値を［Ｎ］値とした。

【００７８】

平均層厚は個々のシラン粘土複合体の層厚の数平均値、最大層厚は個々のシラン粘土複合体の層厚の中で最大の値とした。

【００７９】

分散粒子が大きく、ＴＥＭでの観察が不適当である場合は、光学顕微鏡（オリンパス光学（株）製の光学顕微鏡ＢＨ－２）を用いて上記と同様の方法で［Ｎ］値を求めた。ただし、必要に応じて、サンプルはＬＩＮＫＡＭ製のホットステージＴＨＭ６００を用いて２５０～２７０℃で溶融させ、溶融状態のままで分散粒子の状態を測定した。

【００８０】

板状に分散しない分散粒子のアスペクト比は、長径／短径の値とした。ここで、長径とは、顕微鏡像等において、対象となる粒子の外接する長方形のうち面積が最小となる長方形を仮定すれば、その長方形の長辺を意図する。また、短径とは、上記最小となる長方形の短辺を意図する。

（小角Ｘ線回折法（ＳＡＸＳ）による底面間隔の測定）

Ｘ線発生装置（理学電機（株）製、ＲＵ－２００Ｂ）を用い、ターゲットＣｕＫα線、Ｎｉフィルター、電圧４０ｋＶ、電流２００ｍＡ、走査角2θ＝０．２～１６．０°、ステップ角＝０．０２°の測定条件で底面間隔を測定した

。

【００８１】

底面間隔は、小角Ｘ線回折ピーク角値をＢｒａｇｇの式に代入して算出した。ただし、小角Ｘ線ピーク角値の確認が困難である場合は、層が十分に劈開して結晶性が実質的に消失したかあるいは、ピーク角値がおおよそ０．８°以下
である為に確認が困難であるとみなし、底面間隔の評価結果としては＞１００Å

とした。

（荷重たわみ温度）

ポリカーボネート樹脂組成物を乾燥（１２０℃、５時間）した。型締圧７５ｔの射出成形機（東芝機械（株）製、ＩＳ－７５Ｅ）を用い、樹脂温度３００℃、ゲージ圧約１０ＭＰａ、射出速度約５０％の条件で射出成形して、寸法約１０×１００×６ｍｍの試験片を作製した。得られた試験片の荷重たわみ温度を、ＡＳＴＭＤ－６４８に従って測定した。

（曲げ特性）

荷重たわみ温度の場合と同様にして作製した試験片の曲げ強度および曲げ弾性率を、ＡＳＴＭＤ－７９０に従って測定した。

（異方性）

荷重たわみ温度の場合と同様の条件で作製した、厚さ約３ｍｍのＪＩＳ１号ダンベル状試験片のＭＤ方向とＴＤ方向の線膨張係数の比率で異方性を評価した。比率が１に近いほど異方性が小さく、等方性である。尚、線膨張係数は以下のようにして測定した。

【００８２】

上記のダンベル状試験片の中心部分を約７ｍｍ×７ｍｍに切り取った。セイコー電子（株）社製のＳＳＣ－５２００およびＴＭＡ－１２０Ｃを用い、２０℃で５分間保持した後、２０℃から１５０℃の範囲を昇温速度５℃／分で昇温した。３０～１２０℃の範囲の線膨張係数を算出した。

（反り）

ポリカーボネート樹脂組成物を乾燥（１２０℃、５時間）した後、型締圧７５ｔの射出成形機（東芝機械（株）製、ＩＳ－７５Ｅ）を用い、金型温度８０℃、樹脂温度３００℃、ゲージ圧約１０ＭＰａ、射出速度約５０％の条件で射出成形して、寸法約１２０×１２０×１ｍｍの平板状試験片を作製した。平面上に上記の平板状試験片を置き、反りの程度をみた。

（透明性）

透明性は、荷重たわみ温度の場合と同様の条件で作製した、厚さ約３ｍｍのＪＩＳ１号ダンベル状試験片のヘーズ（曇価）で評価した。

【００８３】

ヘーズの測定は、日本電色工業（株）製の濁度計ＮＤＨ-Σ８０を用い、ＪＩＳＫ７１０３に従って測定した。

（表面外観）

表面外観は、荷重たわみ温度の場合と同様の条件で作製した、厚さ約３ｍｍのＪＩＳ１号ダンベル状試験片の中心線平均粗さで評価した。

【００８４】

中心線表面粗さは、東京精密（株）製の表面粗さ計；ｓｕｒｆｃｏｍ１５００Ａを用いて測定した。

（灰分率）

シラン粘土複合体に由来する、ポリカーボネート樹脂組成物の灰分率は、ＪＩＳＫ７０５２に準じて測定した。

【００８５】

（実施例１）

工程（Ａ）

７０００ｇのイオン交換水に１２５ｇのモンモリロナイトを加え、日本精機（株）製の湿式ミルを用いて５０００ｒｐｍ、５分間撹拌して混合した。その後、１４ｇのＡ１１２０を加えてから更に、表１に示した条件で撹拌する事によってシラン粘土複合体を調製した。（シラン粘土複合体の確認は、固形分を分離、乾燥、粉砕したものをＳＡＸＳにより底面間隔を測定し、およびＴＨＦで洗浄したもののＦＴ－ＩＲによりシラン系化合物に由来する官能基の吸収帯を測定することにより行った。結果は表１に示した。実施例２～５も同様）。次いで１０００ｇのＤＥＣを加えて十分に混合したあと加熱して水を除去する事、すなわち置換法によって、シラン粘土複合体およびＤＥＣを含む粘土分散体（ＡＳｉ-Ｍｏ１／ＤＥＣと称す）を調製した。粘土分散体中のシラン粘土
複合体の底面間隔は、＞１００Åであった。

工程（Ｂ）

２２４０ｇのビスフェノールＡと２０００ｇのＤＭＣ、２０ｇのジブチルスズオキサイドをオートクレーブに投入し、温度１６０℃、圧力７kg/cm2、乾燥窒素

ガスでバブリングして反応させることによって、ビスフェノールＡのビスメチル炭酸エステル（重合性プレポリマーａと称す）を調製し、２３０～２４０℃に保ち、１８０ｒｐｍで激しく攪拌しながら工程（Ａ）で調製した粘土分散体ＡＳｉ-Ｍｏ１／ＤＥＣを逐次添加・混合した。粘土分散体の添加速度は、約１３００ｇ／時間である。

工程（Ｃ）

次いで、反応温度２３０℃～２４０℃、１ｔｏｒｒ以下で溶融重縮合させる事によって、シラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物を得、評価した。

灰分率および特性を、以下の実施例と併せ、表２に示した。

【００８６】

（実施例２）

工程（Ａ）において、Ａ１１２０の量を８ｇとして置換法によって粘土分散体（ＡＳｉ-Ｍｏ２／ＤＥＣ）を調製した以外は、実施例１と同様に行い、シラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物を得、評価した。

【００８７】

（実施例３）

工程（Ａ）において、１４ｇのＡ１１２０の代わりに、２２ｇのＡ１２３０（予め、ＰＨ３.０で加水分解した）を用い、置換法によって粘土分散体（ＥＳｉ-Ｍｏ／ＤＥＣ）を調製した以外は、実施例１と同様に行い（ただし、粘土分散体の添加速度は、約１０００ｇ／時間である）、シラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物を得、評価した。

【００８８】

（実施例４）

工程（Ａ）において、モンモリロナイトの代わりに膨潤性雲母を、またＡ１１２０の量を２８ｇとして置換法によって粘土分散体（ＡＳｉ-Ｍｉ／ＤＥＣ）を調製した以外は、実施例１と同様に行い（ただし、粘土分散体の添加速度は、約８００ｇ／時間である）、シラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物を得、評価した。

粘土分散体中のシラン粘土複合体の底面間隔は、６５Åであった。

【００８９】

（実施例５）

工程（Ａ）

実施例１と同様にして、置換法によりＡＳｉ-Ｍｏ１／ＤＥＣを調製した。

工程（Ｂ）

ポリカーボネート樹脂の反応性モノマーであるビスフェノールＡ（２２４０ｇ）、前記粘土分散体ＡＳｉ-Ｍｏ１／ＤＥＣおよび２０ｇのジブチルスズオキサイドをオートクレーブに投入し、温度１６０℃、圧力７kg/cm2、乾燥窒素ガスでバブリングして混合し、反応させることによって、シラン粘土複合体を含有するビスフェノールＡのビスエチル炭酸エステルを調製した。

工程（Ｃ）

次いで、反応温度２３０℃～２４０℃、減圧度１ｔｏｒｒ以下溶融重縮合する事によって、シラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物を得た。

【００９０】

（比較例１）

粘土分散体を使用せずに、実施例１と同様な方法でポリカーボネート樹脂を得、評価した。結果を以下の比較例と併せ、表３に示した。

（比較例２）

粘土分散体ＡＳｉ－Ｍｏ１／ＤＥＣの代わりに、１２５ｇのモンモリロナイトを用いた以外は、実施例１と同様な方法でポリカーボネート樹脂組成物を得、評価した。

【００９１】

（比較例３）

１２５ｇのモンモリロナイトに１４ｇのＡ１１２０をスプレーを用いて直接噴霧し、１時間混合する事によってモンモリロナイトをシラン処理した。シラン処理モンモリロナイトの底面間隔は１３Åであり、ＴＨＦで洗浄した後、ＦＴ－ＩＲにより測定した結果、１級アミノ基、２級アミノ基、及びエチレン基に由来する吸収帯が観測された。

【００９２】

粘土分散体ＡＳｉ－Ｍｏ１／ＤＥＣの代わりに、上記のシラン処理モンモリロナイトを用いた以外は、実施例１と同様な方法でポリカーボネート樹脂組成物を得、評価した。

（比較例４）

１２５ｇのモンモリロナイトと１０００ｇのＤＥＣを湿式ミルで５０００ｒｐｍ、５分間、撹拌混合し、混合液を得た。

粘土分散体ＡＳｉ－Ｍｏ１／ＤＥＣの代わりに、上記の混合液を用いた以外は、実施例１と同様な方法でポリカーボネート樹脂組成物を得、評価した。

【００９３】

（比較例５）

２５００ｇのＰＣ樹脂および２５０ｇのＧＦを２軸押出機（日本製鋼（株）製、ＬＡＢＯＴＥＸ３０、設定温度２７０～２９０℃、回転数１００ｒｐｍ）を用いて溶融混練し、樹脂組成物を得、評価した。

【００９４】

【発明の効果】

以上、詳述したように、ポリカーボネート樹脂中において、膨潤性ケイ酸塩の単位層同士を分離劈開して、１つの膨潤性ケイ酸塩の凝集粒子を、非常に多数の極微小な薄板状の層に細分化すること、すなわち、平均層厚を５００Å以下にすること、あるいは必要に応じて最大層厚を２０００Å以下にすること、または平均アスペクト比（層長さ／層厚の比）が１０～３００であり、面積１００μm^2中に存在するシラン粘土複合体の単位比率当たりの粒子数を３０以上にすることによって、透明性や表面外観に悪影響を及ぼすことなく、機械的特性や荷重たわみ温度改良、異方性抑制への効果が効率的に得られる。ポリカーボネート樹脂中で、膨潤性ケイ酸塩を上記の如く薄板状に細分化することは、膨潤性ケイ酸塩にシラン系化合物を導入してシラン粘土複合体とする事が必須である。

【００９５】

本発明のポリカーボネート樹脂組成物は、例えば、本発明の製造方法、すなわ

ち、（Ａ）シラン粘土複合体と分散媒を含む粘土分散体を調製する工程、（Ｂ）ポリカーボネート樹脂の重合性プレポリマーと上記の粘土分散体とを混合する工程、（Ｃ）重合性プレポリマーを重合する工程、を包含する製造方法によって得られる。

【００９６】

【表１】

実施例		1	2	3	4	5
イオン交換水	g	7000	7000	7000	7000	7000
モンモリロナイト		125	125	125		125
膨潤性雲母					125	
A1120		14	8		28	14
A1230				22		
撹拌条件：回転数	rpm	5000	5000	5000	6000	5000
撹拌条件：時間	hr	1.5	1.5	2.5	3.0	1.5
単離した粘土複合体の底面間隔	Å	26	23	22	17	26
FT－IRで測定された官能基		1級アミノ基 2級アミノ基 エチレン基	1級アミノ基 2級アミノ基 エチレン基	エーテル基 エチレン基	1級アミノ基 2級アミノ基 エチレン基	1級アミノ基 2級アミノ基 エチレン基

【００９７】

【表２】

実施例			1	2	3	4	5
工程(A)	イオン交換水	g	7000	7000	7000	7000	7000
	モンモリロナイト膨潤性雲母		125	125	125	125	125
	A1120 A1230		14	8	22	28	14
	DEC	g	1000	1000	1000	1000	1000
	粘土分散体	呼称	ASi-Mo1／DEC	ASi-Mo2／DEC	ESi-Mo／DEC	ASi-Mi／DEC	ASi-Mo1／DEC
		シラン粘土複合体の底面間隔(Å)	＞100	＞100	＞100	65	＞100
工程(B)	重合性プレポリマー	a(*1) b(*2)	○	○	○	○	○
	プレポリマーと粘土分散体の混合法	逐次添加混合(*3) 一括混合(*4)	○	○	○	○	○
	粘土分散体の添加速度	g／時間	1300	1300	1000	800	－
工程(C)			溶融重縮合				
灰分率		wt%	4.8	4.8	4.8	4.9	4.8
平均層厚		Å	131	204	258	388	145
最大層厚		Å	438	625	775	1563	450
分散粒子数		／wt%・100μ^2	103	74	70	38	98
アスペクト比			152	98	78	48	138
曲げ強度		MPa	139	131	131	125	138
曲げ弾性率		MPa	4080	3650	3610	3310	4010
HDT		℃	148	144	143	141	146
線膨張係数	MD	／℃×10^{-5}	5.32	5.64	5.88	6.02	5.34
	TD		5.33	5.66	5.91	6.06	5.35
異方性	MD／TD		0.998	0.996	0.995	0.993	0.998
反り			小	小	小	小	小
透明性(濁度)		%	4.3	4.5	5.2	7.8	4.4
表面外観(中心線粗さ)		μm	0.04	0.04	0.06	0.06	0.04

(*1)重合性プレポリマーa:ビスフェノールAとジメチルカーボネート(DMC)が反応して得られるビスフェノールAのビスメチル炭酸エステル

(*2)重合性プレポリマーb:ビスフェノールA。

(*3)逐次添加混合:溶融状態の重合性プレポリマーに、粘土分散体を徐々に連続的に添加しながら混合した。

(*4)一括混合:重合性プレポリマーと粘土分散体を一括投入して混合した

【００９８】

【表３】

比較例			1	2	3	4	5
モンモリロナイト		g		125		125	
ｼﾗﾝ処理ﾓﾝﾓﾘﾛﾅｲﾄ					125		
ガラス繊維							250
DEC						1000	
PC樹脂							2500
重合性ﾌﾟﾚﾎﾟﾘﾏｰa （*1）			○	○	○	○	－
灰分率		wt%	0	4.9	4.8	4.8	4.8
平均層厚 （*2）		Å	未	3.2万	3.5万	3600	未
最大層厚 （*3）		〃	測	90万	90万	8800	測
分散粒子数		／wt%･100μ2	定	1	1	3	定
アスペクト比 （*4）				1.5	1.5	1.6	
曲げ強度		MPa	95	97	97	99	99
曲げ弾性率		〃	2400	2470	2480	2620	4020
HDT		℃	134	135	135	135	158
線膨張係数	MD	／℃･10-5	7.41	7.39	7.42	7.05	1.51
	TD	〃	7.42	7.40	7.43	7.08	15.06
異方性	MD/TD		0.999	0.999	0.999	0.996	0.100
反り			小	中	中	中	大
透明性（濁度）		%	2.1	32.1	35.2	28.9	45.2
表面外観（中心線粗さ）		μm	0.020	0.806	0.812	0.668	1.506

（*1）重合性ﾌﾟﾚﾎﾟﾘﾏｰa：ﾋﾞｽﾌｪﾉｰﾙAとｼﾞﾒﾁﾙｶｰﾎﾞﾈｰﾄ(DMC)が反応して得られる
ﾋﾞｽﾌｪﾉｰﾙAのﾋﾞｽﾒﾁﾙ炭酸ｴｽﾃﾙ

（*2）：板状に分散しなかったので、分散粒子の短径の数平均値とした。

（*3）：板状に分散しなかったので、分散粒子の短径の最大値とした。

（*4）：板状に分散しなかったので、分散粒子の長径／短径比とした。

【書類名】　　要約書

【要約】

【課題】　透明性や表面外観を損なわず、かつ、比重増加や異方性を抑え、機械的特性、荷重たわみ温度に優れるポリカーボネート樹脂組成物を提供する。

【解決手段】　ポリカーボネート樹脂、およびシラン粘土複合体を含有するポリカーボネート樹脂組成物であって、

上記シラン粘土複合体が、膨潤性ケイ酸塩に下記一般式（１）

ＹｎＳｉＸ４－ｎ　　（１）

（ただし、ｎは０～３の整数であり、Ｙは、炭素数１～２５の炭化水素基、及び炭素数１～２５の炭化水素基と置換基から構成される有機官能基であり、Ｘは加水分解性基および／または水酸基である。ｎ個のＹ、４－ｎ個のＸは、それぞれ同種でも異種でもよい。）で表されるシラン系化合物が導入される事により調製され、そして、ポリカーボネート樹脂組成物中における上記シラン粘土複合体の平均層厚が５００Å以下である、ポリカーボネート樹脂組成物。

【選択図】　なし

出証特平１１－３０８７５８９

【書類名】　職権訂正データ
【訂正書類】　特許願

＜認定情報・付加情報＞
【特許出願人】　申請人
【識別番号】　000000941
【住所又は居所】　大阪府大阪市北区中之島３丁目２番４号
【氏名又は名称】　鐘淵化学工業株式会社

出　願　人　履　歴　情　報

識別番号　　〔０００００９４１〕

１．変更年月日　　１９９０年　８月２７日
［変更理由］　新規登録
住　所　大阪府大阪市北区中之島３丁目２番４号
氏　名　鐘淵化学工業株式会社

THIS PAGE BLANK (USPTO)